

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   1 月 2 8 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 0 1 9 5 4 5  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 3 - 0 1 9 5 4 5 ]

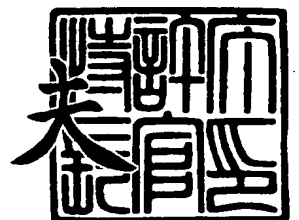
出   願   人            株式会社半導体エネルギー研究所  
Applicant(s):



2 0 0 3 年 1 2 月   2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康



出証番号   出証特 2 0 0 3 - 3 0 9 9 5 3 3

【書類名】 特許願

【整理番号】 P006928

【提出日】 平成15年 1月28日

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 吉富 修平

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 坂田 淳一郎

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 高橋 正弘

【特許出願人】

【識別番号】 000153878

【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所

【代表者】 山崎 舜平

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 002543

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 発光素子およびその作製方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

正孔輸送材料、電子輸送材料、第一不純物および第二不純物を含む有機化合物膜が、陽極および陰極の間に設けられた発光素子において、

前記有機化合物膜は、前記陽極側から、前記正孔輸送材料および前記第一不純物を含む第一の混合領域と、前記正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、前記電子輸送材料および前記第二不純物を含む第二の混合領域と、前記電子輸送材料からなる電子輸送領域、とが順次積層されていることを特徴とする発光素子。

【請求項 2】

請求項 1 において、前記第一不純物および前記第二不純物は色素材料からなることを特徴とする発光素子。

【請求項 3】

請求項 1 または請求項 2 において、前記第一の混合領域と前記正孔輸送領域との合計の膜厚に対し、前記正孔輸送領域の膜厚の占める割合は、10%以上であることを特徴とする発光素子。

【請求項 4】

請求項 1 乃至 3 において、前記第一の混合領域中の前記第一不純物の濃度は 0.1wt%から10wt%であることを特徴とする発光素子。

【請求項 5】

正孔輸送材料、電子輸送材料、第一不純物および第二不純物を含む有機化合物膜が、陽極および陰極の間に設けられた発光素子の作製方法において、前記有機化合物膜は、前記陽極に接して前記正孔輸送材料および前記第一不純物を含む第一の混合領域を形成し、前記第一の混合領域に接して前記正孔輸送材料からなる正孔輸送領域を形成し、前記正孔輸送領域に接して前記電子輸送材料および前記第二不純物を含む第二の混合領域を形成し、

前記第二の混合領域に接して前記電子輸送材料からなる電子輸送領域を形成することを特徴とする発光素子の作製方法。

【請求項 6】

請求項 5 において、前記第一不純物および前記第二不純物は色素材料からなることを特徴とする発光素子の作製方法。

【請求項 7】

請求項 5 または請求項 6 において、前記正孔輸送領域は、前記第一の混合領域と前記正孔輸送領域との合計の膜厚に対し、前記正孔輸送領域の膜厚の占める割合が 1 0 % 以上であるように形成することを特徴とする発光素子の作製方法。

【請求項 8】

請求項 5 乃至 7 において、前記第一の混合領域は、前記第一不純物の濃度が 0 . 1 w t % から 1 0 w t % であるように形成することを特徴とする発光素子の作製方法。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する分野】

本発明は、陽極と、陰極と、電界を加えることで発光が得られる有機化合物を含む膜（以下、「有機化合物膜」と記す）と、を有する有機発光素子及びその作製方法に関する。

【従来の技術】

有機発光素子は、電界を加えることにより発光する素子である。その発光機構は、電極間に有機化合物膜を挟んで電圧を印加することにより、陰極から注入された電子および陽極から注入された正孔が有機化合物膜中で再結合して、励起状態の分子（以下、「分子励起子」と記す）を形成し、その分子励起子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光すると言われている。

【 0 0 0 2 】

なお、有機化合物が形成する分子励起子の種類としては、一重項励起状態と三重項励起状態が可能であると考えられるが、本明細書中ではどちらの励起状態が発光に寄与する場合も含むこととする。

## 【0003】

このような有機発光素子において、通常、有機化合物膜は $1\mu\text{m}$ を下回るほどの薄膜で形成される。また、有機発光素子は、有機化合物膜そのものが光を放出する自発光型の素子であるため、従来の液晶ディスプレイに用いられているようなバックライトも必要ない。したがって、有機発光素子は極めて薄型軽量に作製できることが大きな利点である。

## 【0004】

また、例えば $100\sim 200\text{nm}$ 程度の有機化合物膜において、キャリアを注入してから再結合に至るまでの時間は、有機化合物膜のキャリア移動度を考えると数十ナノ秒程度であり、キャリアの再結合から発光までの過程を含めてもマイクロ秒以内のオーダーで発光に至る。したがって、非常に応答速度が速いことも特長の一つである。

## 【0005】

さらに、有機発光素子はキャリア注入型の発光素子であるため、直流電圧での駆動が可能であり、ノイズが生じにくい。駆動電圧に関しては、まず有機化合物膜の厚みを $100\text{nm}$ 程度の均一な超薄膜とし、また、有機化合物膜に対するキャリア注入障壁を小さくするような電極材料を選択し、さらにはヘテロ構造（二層構造）を導入することによって、 $5.5\text{V}$ で $100\text{cd}/\text{m}^2$ の十分な輝度が達成された（例えば、非特許文献1参照）。

## 【0006】

## 【非特許文献1】

C. W. タン (C. W. Tang) ら、アプライド フィジクス レターズ、1987年、Vol. 51, No. 12, 913-915。

## 【0007】

こういった薄型軽量・高速応答性・直流低電圧駆動などの特性から、有機発光素子は次世代のフラットパネルディスプレイ素子として注目されている。また、自発光型であり視野角が広いことから、視認性も比較的良好であり、携帯機器の表示画面に用いる素子として有効と考えられている。

## 【0008】

ところで、文献 1 において示された有機発光素子の構成であるが、まず、有機化合物膜に対するキャリア注入障壁を小さくする方法として、仕事関数が低い上に比較的安定な Mg : Ag 合金を陰極に用い、電子の注入性を高めている。このことにより、有機化合物膜に大量のキャリアを注入することを可能としている。

#### 【0009】

さらに有機化合物膜として、芳香族ジアミン化合物からなる正孔輸送層とトリス（8-キノリノラト）-アルミニウム錯体（以下、「Alq3」と記す）からなる電子輸送性発光層とを積層するという、シングルヘテロ構造を適用することにより、キャリアの再結合効率を飛躍的に向上させている。このことは、以下のよう説明される。

#### 【0010】

例えば、Alq3 単層のみを有する有機発光素子の場合では、Alq3 が電子輸送性であるため、陰極から注入された電子のほとんどは正孔と再結合せずに陽極に達してしまい、発光の効率は極めて悪い。すなわち、単層の有機発光素子を効率よく発光させる（あるいは低電圧で駆動する）ためには、電子および正孔の両方をバランスよく輸送できる材料（以下、「バイポーラー材料」と記す）を用いる必要があり、Alq3 はその条件を満たしていない。

#### 【0011】

しかし、非特許文献 1 のようなシングルヘテロ構造を適用すれば、陰極から注入された電子は正孔輸送層と電子輸送性発光層との界面でブロックされ、電子輸送性発光層中へ閉じこめられる。したがって、キャリアの再結合が効率よく電子輸送性発光層で行われ、効率のよい発光に至るのである。

#### 【0012】

また、非特許文献 1 における有機発光素子は、正孔の輸送は正孔輸送層が行い、電子の輸送および発光は電子輸送性発光層が行うという、機能分離が特徴であるとも言える。この機能分離の概念はさらに発展し、正孔輸送、電子輸送、および発光の三種類の機能を、それぞれ異なる材料が担う手法が提案されるようになった。この手法により、キャリア輸送性は乏しくとも発光効率は高い材料を発光材料として使用することができ、それに伴って有機発光素子の発光効率も向上する

ためである。

#### 【0013】

その代表的な手法は、色素のドーピングである（例えば、非特許文献2参照。）  
。すなわち、図3(a)に示すように、正孔輸送層101および電子輸送層102  
（発光層でもある）を設けたシングルヘテロ構造において、電子輸送層102に  
色素103をドーピングすることにより、発光領域である境界領域内の色素103の  
発光色を得るものである。色素103は、正孔輸送層101側にドーピングする場合  
も考えられる。

#### 【0014】

##### 【非特許文献2】

C. W. タン (C. W. Tang) ら、ジャーナル オブ アプライ  
ド フィジクス、1989年、vol. 65, No. 9, 3710-3716

#### 【0015】

これに対し、図3(b)に示すように、正孔輸送層と電子輸送層の間に発光層を挟  
むというダブルヘテロ構造（三層構造）の手法もある（例えば、非特許文献3参  
照。）。この手法の場合、正孔輸送層106から発光層105に正孔が、電子輸  
送層107から発光層105に電子が、それぞれ注入されるため、発光層105  
においてキャリアの再結合が起こり、発光層105として用いた材料の発光色に  
て発光に至るのである。

#### 【0016】

##### 【非特許文献3】

チハヤ アダチ、外3名、ジャパニーズ ジャーナル オブ アプラ  
イド フィジクス、1988年、Vol. 27, No. 2, L269-L27  
1

#### 【0017】

こういった機能分離の利点としては、機能分離することによって一種類の有機材  
料に様々な機能（発光性、キャリア輸送性、電極からのキャリア注入性など）を  
同時に持たせる必要がなくなり、分子設計等に幅広い自由度を持たせることがで  
きる点にある（例えば、無理にバイポーラー材料を探索する必要がなくなる）。



つまり、発光特性のいい材料、キャリア輸送性が優れる材料などを、各々組み合わせることで、容易に高発光効率が達成できるということである。

#### 【 0 0 1 8 】

以上の利点から、非特許文献 1 乃至 3 で述べられた積層構造の概念（キャリアのブロッキング機能ないしは機能分離）自体は、広く利用されている。

#### 【 0 0 1 9 】

このように機能分離した有機発光素子において、色素材料のドーピングという手法は、長寿命化に対して特に有効である（例えば、特許文献 1 参照。）。その要因として、ホスト材料への円滑なエネルギー移動や、ホスト材料の膜質改善などが挙げられる。特許文献 1 では、正孔輸送層にルブレンをドーピングし、素子の寿命を延ばしている。

#### 【 0 0 2 0 】

##### 【特許文献 1】

特開平 1 0 - 2 5 5 9 8 5 号公報

#### 【 0 0 2 1 】

##### 【発明が解決しようとする課題】

上記特許文献 1 の発光素子は、正孔輸送層にも色素材料をドーピングするため、電子輸送層と正孔輸送層にそれぞれ色素材料をドーピングした図 2 のような構造をしている。

#### 【 0 0 2 2 】

前述のとおり、図 2 の素子においても、発光領域は正孔輸送層 2 0 1 と電子輸送層 2 0 2 の境界領域 2 0 3 に存在する。よって境界領域 2 0 3 内に存在する第一ドーピング材料と第二ドーピング材料の 2 種類の色素材料が両方発光してしまう。

#### 【 0 0 2 3 】

このように、本来発光させるべき波長だけでなく異なる波長での発光が起こると、純度の高い発光色を得ることが出来ない。赤、緑、青それぞれ色純度の高い光を必要とするフルカラー有機発光装置に、こういった異なる波長で発光する素子を用いることは好ましくない。

**【0024】**

本発明は、色純度の高い発光を得ると同時に、連続駆動時において安定して発光する高耐性で長寿命である信頼性の高い発光素子を提供することを課題とする。

**【0025】****【課題を解決するための手段】**

本発明の発光素子は、正孔輸送材料、電子輸送材料、第一不純物（第一ドーピング材料）および第二不純物（第二ドーピング材料）を含む有機化合物膜が、陽極および陰極の間に設けられた発光素子において、前記有機化合物膜は、前記陽極側から、前記正孔輸送材料および前記第一不純物を含む第一の混合領域と、前記正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、前記電子輸送材料および前記第二不純物を含む第二の混合領域と、前記電子輸送材料からなる電子輸送領域、とが順次積層されていることを特徴とする。

**【0026】**

正孔輸送領域とは、ドーピング材料が含まれない正孔輸送材料のみからなる領域である。よって、正孔輸送領域を設けることで、第一の混合領域に電子が注入されるのをブロックすることが可能となり、第一ドーピング材料が含まれる第一の混合領域での電子と正孔の再結合が無くなる。第一の混合領域内での再結合が無くなることで、第一ドーピング材料の発光を呈さなくなる。その結果、本発明では第二ドーピング材料のみ、発光することが可能となり、第二ドーピング材料として、発光させるべき発光材料を用いることで所望の発光のみが得られる発光素子の作製が可能となる。さらに本発明では、第一ドーピング材料を正孔輸送材料にドーピングしない有機発光素子に比べて長寿命化を実現でき、連続駆動時において安定した発光が得られる。

**【0027】**

従って、本発明によって、色純度の高い発光を得ると同時に、連続駆動時において安定して発光する高耐性で長寿命である信頼性の高い発光素子を得ることが出来る。

**【0028】**

また、本発明の発光素子の作製方法は、正孔輸送材料、電子輸送材料、第一不純

物および第二不純物を含む有機化合物膜が、陽極および陰極の間に設けられた発光素子の作製方法において、前記有機化合物膜は、前記陽極に接して前記正孔輸送材料および前記第一不純物を含む第一の混合領域を形成し、前記第一の混合領域に接して前記正孔輸送材料からなる正孔輸送領域を形成し、前記正孔輸送領域に接して前記電子輸送材料および前記第二不純物を含む第二の混合領域を形成し、前記第二の混合領域に接して前記電子輸送材料からなる電子輸送領域を形成することを特徴とする。

#### 【0029】

上記構成において、第一不純物（第一ドーピング材料）または、第二不純物（第二ドーピング材料）は色素材料であってもよい。

#### 【0030】

また、上記構成において、正孔輸送領域を設けることで、第一の混合領域に電子が注入されるのをブロックし、第二ドーピング材料のみしか発光しない。しかし、前記正孔輸送領域の膜厚が薄すぎると電子を十分にブロック出来ず、電子が通過し第一の混合領域に注入され、第一ドーピング材料も発光してしまう。よって、前記混合領域と前記正孔輸送領域との合計の膜厚に対し、前記正孔輸送領域の膜厚の占める割合は10%以上であることが好ましい。

#### 【0031】

また、第一の不純物（第一ドーピング材料）を正孔輸送材料に数wt%ドーピングすることで、ドーピングを行わない素子に比べて寿命が延びる効果がある。第一ドーピング材料はルブレンなどの多環式化合物が適しており、その濃度は0.1wt%から10wt%の間であることが好ましい。

#### 【0032】

従って、以上で述べたような本発明の発光素子からなる発光装置を表示部等として用いた電気器具も、視認性および信頼性が高く極めて有用である。

#### 【0033】

なお、本明細書中における発光装置とは、発光素子として有機発光素子を用いた画像表示デバイスを指す。また、有機発光素子にコネクタ、例えば異方導電性フィルム（FPC: Flexible printed circuit）も

しくはTAB (Tape Automated Bonding) テープもしくはTCP (Tape Carrier Package) が取り付けられたモジュール、TABテープやTCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、または有機発光素子にCOG (Chip on Glass) 方式によりIC (集積回路) が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。

#### 【0034】

##### 【発明の実施の形態】

以下では、本発明を実施する際の形態について図1を用いて述べる。

#### 【0035】

図1は、本発明の発光素子の一例であり、陽極と陰極に挟まれた有機化合物膜（導電体層）は、陽極から陰極に、正孔輸送材料および第一ドーピング材料の両方を含む第一の混合領域301、正孔輸送材料のみからなる正孔輸送領域302、電子輸送材料および第二ドーピング材料の両方を含む第二の混合領域303、電子輸送材料のみからなる電子輸送領域304という構造をしている。図1のような構造にすることで、所望の波長でのみ発光し、連続駆動時において安定した発光が得られる。

#### 【0036】

なお、有機発光素子は、発光を取り出すために少なくとも第一電極または第二電極の一方が透明であればよい。透明な電極としては、代表的にはITOを用いる。また、その他ITOにSiO<sub>2</sub>を0.1～10wt%添加したもの、ITOにZnOを0.1～10wt%添加したものを用いても良い。ITOにSiO<sub>2</sub>を0.1～10wt%添加したものは、ITO表面の平坦性が向上し、上下電極間のショートを防止できる。基板上に透明な第一電極（陽極）を形成し、第一電極（陽極）から光を取り出す素子構造が一般的であるが、第一電極を逆に陰極として陰極から光を取り出す構造や、基板とは逆側から光を取り出す構造も適用可能である。

#### 【0037】

本発明に適用できる有機発光素子の発光は、どのような発光色を呈するものでもよい。フルカラーの発光装置を作製する場合などは、中心波長が異なる波長で発

光する複数の発光素子を組み合わせればよく、この方法は本発明を適用するのに好ましい。また白色発光を呈する有機発光素子にカラーフィルターを組み合わせる方法や、青色発光を呈する有機発光素子に色変換層を組み合わせる方法などを用いれば良い。特に本発明は光の三原色（青、赤、緑）を組み合わせる方法に適用するのが好ましい。

#### 【0038】

また、陽極と第一の混合領域の間に正孔注入材料からなる正孔注入層、陰極と第二の混合領域の間に電子注入材料からなる電子注入層を形成した構造としてもよい。

#### 【0039】

次に、正孔注入材料、正孔輸送材料、電子輸送材料、電子注入材料、発光材料などに好適な材料を以下に列挙する。ただし、本発明の発光素子に用いる材料は、これらに限定されない。

#### 【0040】

正孔注入材料としては、有機化合物であればポルフィリン系の化合物が有効であり、フタロシアニン、銅フタロシアニン（以下、「CuPc」と記す）が挙げられる。高分子化合物では、ポリビニルカルバゾールなどがあるが、先に述べたように、共役系の導電性高分子化合物に化学ドーピングを施した材料もあり、ポリスチレンスルホン酸をドーブしたポリエチレンジオキシチオフェンや、ヨウ素などのルイス酸をドーブしたポリアニリン、ポリピロールなどが挙げられる。また、絶縁体の高分子化合物も陽極の平坦化の点で有効であり、ポリイミドなどが挙げられる。さらに、無機化合物も用いられ、金や白金などの金属薄膜の他、酸化アルミニウムの超薄膜などが挙げられる。

#### 【0041】

正孔輸送材料として最も広く用いられているのは、芳香族アミン系（すなわち、ベンゼン環－窒素の結合を有するもの）の化合物である。広く用いられている材料として、4，4′-ビス（ジフェニルアミノ）-ビフェニルや、その誘導体である4，4′-ビス[N-（3-メチルフェニル）-N-フェニル-アミノ]-ビフェニル、4，4′-ビス[N-（1-ナフチル）-N-フェニル-アミノ]

ービフェニル（以下、「 $\alpha$ -NPD」と記す）がある。4, 4', 4''-トリス（N, N-ジフェニル-アミノ）-トリフェニルアミン、4, 4', 4''-トリス [N-（3-メチルフェニル）-N-フェニル-アミノ] -トリフェニルアミンなどのスターバースト型芳香族アミン化合物が挙げられる。

#### 【0042】

電子輸送材料としては、金属錯体がよく用いられ、先に述べたAlq3、トリス（4-メチル-8-キノリノラト）アルミニウム（以下、「Almq」と記す）、ビス（10-ヒドロキシベンゾ[h]-キノリナト）ベリリウム（以下、「Bebq」と記す）などのキノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体や、混合配位子錯体であるビス（2-メチル-8-キノリノラト）-（4-ヒドロキシ-ビフェニル）-アルミニウム（以下、「BA1q3」と記す）などがある。また、ビス[2-（2-ヒドロキシフェニル）-ベンゾオキサゾラト]亜鉛（以下、「Zn(BOX)<sub>2</sub>」）と記す）、ビス[2-（2-ヒドロキシフェニル）-ベンゾチアゾラト]亜鉛（以下、「Zn(BZT)<sub>2</sub>」）と記す）などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体もある。さらに、金属錯体以外にも、2-（4-ビフェニル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール、1, 3-ビス[5-（p-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼンなどのオキサジアゾール誘導体、3-（4-tert-ブチルフェニル）-4-フェニル-5-（4-ビフェニル）-1, 2, 4-トリアゾール、3-（4-tert-ブチルフェニル）-4-（4-エチルフェニル）-5-（4-ビフェニル）-1, 2, 4-トリアゾールなどのトリアゾール誘導体、バソフェナントロリン・バソキュプロインなどのフェナントロリン誘導体が電子輸送性を有する。

#### 【0043】

電子注入材料としては、上で述べた電子輸送材料を用いることができる。その他に、フッ化リチウムなどのアルカリ金属ハロゲン化物や、酸化リチウムなどのアルカリ金属酸化物のような絶縁体の、超薄膜がよく用いられる。また、リチウムアセチルアセトネートや8-キノリノラト-リチウムなどのアルカリ金属錯体も有効である。

## 【0044】

発光材料としては、先に述べた  $Alq_3$ 、 $Almq$ 、 $BeBq$ 、 $BAlq$ 、 $ZN(BOX)_2$ 、 $ZN(BTZ)_2$  などの金属錯体の他、第二ドーピング材料として用いる各種蛍光色素が有効である。蛍光色素としては、緑色のキナクリドン、2,9-ジメチルキナクリドン、ベンゾ-[h]-ベンゾ-[7,8]-キノ-[2,3-b]-アクリジン-7,16-ジメチル-9,18-ジヒドロ（以下、DMNQAと記す）等のキナクリドン誘導体、青色のペリレン、赤橙色の4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランなどがある。また、三重項発光材料も可能であり、白金ないしはイリジウムを中心金属とする錯体が主体である。三重項発光材料として、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム、2,3,7,8,12,13,17,18-オクタエチル-21H,23H-ポルフィリン-白金などが挙げられる。

## 【0045】

正孔輸送層にドーピングする第一ドーピング材料としては、ルブレン系などの多環式化合物が用いられ、特にルブレンを好適な物質として用いる。

## 【0046】

以上で述べたような各機能を有する材料を、各々組み合わせ、本発明の発光素子に適用することにより、所望の波長領域での発光が得られ、さらに素子の寿命が長い有機発光素子を作製することができる。

## 【0047】

以上の構成でなる本発明について、以下に示す実施例でもってさらに詳細な説明を行うこととする。

## 【0048】

## 【実施例】

## (実施例1)

本実施例では、ITOなどの透明電極をあらかじめ作製した基板に、図4に示す蒸着装置を用いた有機化合物膜および第二電極(陰極)の作製方法を示す。

## 【0049】

図4に示す蒸着装置は、搬送室401（基板や対向基板、メタルマスクを搬送す

るための搬送ロボット402付属)と、及びこれに連結された基板・マスクストック室403と、前処理室404と、有機蒸着室1・405、有機蒸着室2・406と、金属蒸着室407と、CVD室408と、封止ガラスストック室409と、封止室410とを有する。

#### 【0050】

最初に、基板と蒸着用メタルマスクの投入を基板・マスクストック室にて行う。基板・マスクストック室はエレベーター構造(本実施例では11段とする)になっており、各段に基板(本実施例では126.6mm×126.6mmとする)或いはマスク兼用になっている。基板、マスク合わせて最大計10枚収納可能である。残る1段は基板を加熱するための基板加熱段となっているため、投入時には空段としておく。尚、本実施例における製造装置では基板の向きは常にフェイスダウンとする。

#### 【0051】

次に、対向基板の投入を封止ガラスストック室にて行う。封止ガラスストック室はエレベーター構造(本実施例では10段とする)になっており、各段に前処理(代表的には、パネル内外の水分を吸収するための乾燥剤貼り付け、及び基板と貼り合わせるためのシール剤塗布を指す)を終えた対向基板(本実施例では126.6mm×126.6mmとする)を最大10枚収納する。尚、本実施例における製造装置では、対向基板の向きは常にフェイスアップである。

#### 【0052】

本実施例における製造装置では、投入した全基板に対して成膜処理を先に終らせてしまう。これを「蒸着モード」と呼ぶ。この蒸着モードが終了した後、対向基板との貼り合わせを行う「封止モード」に入る。

#### 【0053】

以下、基板を7枚、マスクを3枚使用する場合を例に取り、蒸着モードについて説明する。

#### 【0054】

まず、搬送室は予め高真空に排気されているものとする。蒸着モード中、搬送室は常に高真空に保持される。次に、基板・マスクストック室を排気後、マスクを



有機蒸着室・有機蒸着室・金属室へ搬送する。本製造装置ではマスクを使用する成膜室はこの3つである。以上の準備が完了したら、基板を前処理室に搬送する。前処理室では真空中基板加熱、及びガス1系統を使用してのプラズマ処理（例えばO<sub>2</sub>プラズマ処理）が可能であるが、いずれの処理も基板全面に対して行われる。

#### 【0055】

尚、基板加熱に関しては、基板・マスクストック室の基板加熱段でも行うことが可能なため、スループット向上を図るにはここで行ってもよい。本実施例では、排気後の基板・マスクストック室において、基板真空加熱を行うことにする。即ち、基板を基板・マスクストック室から搬送室経由で基板・マスクストック室の基板加熱段に搬送し、ヒーター加熱を行うことにする。加熱終了後、基板を搬送室経由で前処理室に搬送し、冷却（即ち、前処理室で待機）を行うことによって、基板冷却中も次の基板を基板・マスクストック室で真空加熱することが可能となり、スループット向上に役立つ。

#### 【0056】

次に、基板を前処理室から搬送室経由で有機蒸着室2へ搬送し、マスクとのCCDカメラを2台使用したアライメント処理終了後、正孔注入層CuPcを20nm形成する。有機蒸着室2では、固定された蒸着源（本実施例では8箇所とする）から材料を蒸発させ、上方の基板上に成膜する。蒸着中基板は回転しており、これによって基板上に形成される膜厚の面内分布が向上する。CuPc形成後、正孔輸送層を形成する。はじめに共蒸着法によって $\alpha$ -NPD中にルブレンを5wt%ドーピングした混合領域を20nm形成する。 $\alpha$ -NPDとルブレンの混合領域を形成した後、単にルブレん蒸着源に付属する蒸着源を閉じることにより $\alpha$ -NPDのみで構成された非ドーピング層を連続的に20nm形成する。

#### 【0057】

次に、基板を搬送室経由で有機蒸着室1へ搬送する。蒸着源の数が6箇所であること除いて、その他の機構及び成膜処理方法は有機蒸着室2と全く同様である。ここでは、発光層及び電子輸送層を兼ねるAlq<sub>3</sub>を成膜する。特に、発光層においてはDMNQ Aが共蒸着法によって微量に（例えば0.5wt%程度）ドー

ピングされる。このドーピングにより、完成後のパネルにおけるパネル寿命が大幅に向上する。また、発光層から電子輸送層への切り替えは、単にDMNQ A蒸着源に付属する蒸着源シャッターを閉じるだけでスムーズに行われる。このような方法で発光層を37.5 nm、電子輸送層を37.5 nm形成する。

#### 【0058】

次に、基板を搬送室経由で金属蒸着室へ搬送する。ここでは、電子注入層CaF<sub>2</sub>を1 nm、及び陰極Alを200 nm成膜する。金属蒸着室では、抵抗加熱法（抵抗加熱蒸着源は6点式×2の計12点存在する）及びEB法（EB蒸着源は6点式×1の計6点存在する）での成膜が可能だが、基板上TF Tへのダメージを考慮すると、抵抗加熱法の使用が望ましい。蒸着源以外の機構及び成膜処理方法は有機蒸着室1及び有機蒸着室2と全く同様である。

#### 【0059】

尚、CVD室においては、基板全面にCVD膜を形成することが可能である。また、ガスを複数種使用してのプラズマ処理も可能である。これを利用して、例えば保護膜としての窒化珪素膜を陰極Al上に形成したり、基板に対する前処理としての複数種ガス使用プラズマ処理（例えばAr+O<sub>2</sub>プラズマ処理）を行ったり、といった処理を行ってもよい。

#### 【0060】

以上のように必要な処理を終えた基板は、搬送室経由で再び出発点の基板・マスクストック室に戻す。尚、上記は緑色発光の単色パネルを得るために必要な一連の処理を示したが、特に限定されない。

#### 【0061】

投入した全ての基板に対して同様の処理が完了し、マスクを各蒸着室から基板・マスクストック室へ回収したら、蒸着モードは終了し、本製造装置は引き続き封止モードに入る。

#### 【0062】

尚、以上では、使用するマスク3枚を予め蒸着室に配置し、蒸着処理中はマスクを交換しない「マスク交換無しモード」の場合についてのみ記載したが、素子構造によっては、蒸着室1室につき複数のマスクを使用したい、という要求も当然

出てくる。そのような場合でも本製造装置は対応可能であり、基板・マスクストック室に予め必要なマスクを3枚以上セットしておき、蒸着室での処理の合間にマスク交換を行えばよい（但し、使用マスクを増やせば、同時に流せる基板の枚数は当然減少する）。これを「マスク交換有りモード」と呼んで区別している。

#### 【0063】

以下、封止モードについて説明する。

#### 【0064】

まず搬送室、基板・マスクストック室、封止ガラスストック室を常圧に戻す必要がある。搬送室及び基板・マスクストック室に関しては、蒸着モード終了後すぐにベント処理を行えばよい。ベント処理とは、排気によって低圧化された室内に、再び気体を注入し常圧に戻す処理のことである。本実施例ではベント処理における注入する気体として窒素を用いる。封止ガラスストック室に関しては、前処理を終えた対向基板のセットをなるべく封止直前に行うことによって、シール剤や乾燥剤の劣化を抑えることが出来る。セット後、封止ガラスストック室の排気・ベント処理を複数回（本実施例では2回とする）行うことによって、封止モード時における搬送室の水分濃度の低下が防止出来るのみならず、対向基板に塗布したシール剤の脱泡も行える。封止ガラスストック室の最後のベント処理が終了後、すぐに封止処理に入れるのが理想的である。これは、搬送室及び基板・マスクストック室のベント処理、封止ガラスストック室への対向基板投入、さらに封止ガラスストック室のベント処理、の各処理のタイミングを作業者がうまく設定することによって可能となる。

#### 【0065】

次に、基板を基板・マスクストック室から、対向基板を封止ガラスストック室から、それぞれ搬送室経由でそれぞれ封止室に搬送する。封止室において、外形端面合せによる基板・対向基板のアライメント（位置合わせ）処理終了後、基板・対向基板を貼り合せ、加圧することによって封止を行う。さらに対向基板側（下側）からUV照射を行い、シール剤（本実施例ではUV硬化樹脂とする）を硬化させる。この際、遮光マスクを使用し、シール剤の部分だけ選択的にUV照射を施すことが可能である。尚、本実施例では遮光マスクは石英ガラス上にCr膜が

成膜されたものであり、搬送室の搬送ロボットでは搬送不可能であるため、封止室に直接作業者がセッティングを行うものとする。

#### 【0066】

以上の封止処理によって、基板と対向基板は一体のパネルとなる。このパネルを封止室から搬送室経由で基板・マスクストック室に搬送する。以下次の基板及び対向基板に関しても同様の処理を行う。最終的に7枚のパネルが基板・マスクストック室に収納され、封止モードは終了する。

#### 【0067】

封止モード終了後、基板・マスクストック室から完成したパネルを取り出せば良い。

#### 【0068】

以上に示した、蒸着モード、及び封止モードにおける一連の処理は制御系を利用して自動的に行うことが可能である。基板毎に搬送ルート・処理内容等の情報を含んだ予め登録しておけば、処理開始の合図を送るだけで、この登録した情報に従って自動的に各基板に対する一連の処理が行われる。

#### 【0069】

(比較例1)

正孔輸送層作製において、非ドーピング層を形成せずに共蒸着法によって $\alpha$ -NPD中にルブレンを5wt%ドーピングした層を40nm形成すること以外実施例1と同様な方法で発光素子を作製した。

#### 【0070】

実施例1及び比較例1で作製した素子について、電流密度125mA/m<sup>2</sup>時のELスペクトルを図5に示す。ELスペクトルは、各素子とも基板側からの発光を測定した。実施例1の方法で作製した発光素子では、電子輸送層にドーピングしたDMNQAに起因するスペクトル501が観測された。しかし、比較例1の方法により作製した発光素子は、DMNQAの発光のほかに、正孔輸送層にドーピングしたルブレンに起因するピークを含むスペクトル503が観測された。

#### 【0071】

このように、比較例1で作製した発光素子は2種類の材料の発光を呈し、実施例

1では1種類の材料のみでの発光を呈している。よって所望の波長のみの純度の高い発光色を得るためには、実施例1およびで作製した発光素子を用いたほうがよいことが確認できた。

#### 【0072】

(比較例2)

正孔輸送層作製において、混合領域を形成せずに $\alpha$ -NPDのみ40nm形成すること以外実施例1と同様な方法で発光素子を作製した。

#### 【0073】

実施例1及び比較例2で作製した素子について、電流密度125mA/m<sup>2</sup>時のELスペクトルを図5に示す。ELスペクトルは、各素子とも基板側からの発光を測定した。実施例1および比較例2の方法で作製した発光素子では、電子輸送層にドーピングしたDMNQAに起因するスペクトル501および502が観測された。

#### 【0074】

また、実施例1および比較例2で作製した発光素子について、初期輝度1000cd/m<sup>2</sup>となる電流値で定電流駆動させたときの、経過時間に対する輝度劣化を図6に示す。

#### 【0075】

実施例1で作製した発光素子の時間-輝度曲線601と比較例2で作製した発光素子の時間-輝度曲線602を比較すると、実施例1で作製した発光素子の方が、経過時間に対する輝度劣化が緩やかであった。

#### 【0076】

従って、本発明である実施例1において作製された発光素子は、純度の高い発光色が得られ、かつ、寿命の長い発光素子であることが確認できた。

#### 【0077】

(実施例2)

本実施例では、画素部に本発明の電界発光素子を有する発光装置について図7を用いて説明する。なお、図7(a)は、発光装置を示す上面図、図7(b)は図7(a)をB-B'で切断した断面図である。点線で示された701は駆動回路部

(ソース側駆動回路)、702は画素部、703は駆動回路部(ゲート側駆動回路)である。また、704は封止基板、705はシール剤であり、シール剤705で囲まれた内側707は、空間になっている。

#### 【0078】

なお、708はソース側駆動回路701及びゲート側駆動回路703に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となるFPC709からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基盤(以下、「PWB」と記す)が取り付けられていても良い。本明細書における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

#### 【0079】

次に、断面構造について図7(b)を用いて説明する。基板710上には駆動回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース側駆動回路701と、画素部702が示されている。

#### 【0080】

なお、ソース側駆動回路701はnチャネル型TFT723とpチャネル型TFT724とを組み合わせたCMOS回路が形成される。また、駆動回路を形成するTFTは、公知のCMOS回路、PMOS回路もしくはNMOS回路で形成しても良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に形成することもできる。

#### 【0081】

また、画素部702はスイッチング用TFT711と、電流制御用TFT712とそのドレインに電氣的に接続された第1の電極713とを含む複数の画素により形成される。なお、第1の電極713の端部を覆って絶縁物714が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。

#### 【0082】

また、カバレッジを良好なものとするため、絶縁物 714 の上端部または下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物 714 の材料としてポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物 714 の上端部のみに曲率半径 ( $0.2\ \mu\text{m} \sim 3\ \mu\text{m}$ ) を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物 714 として、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。

#### 【0083】

第1の電極 713 上には、有機化合物層 716、および第2の電極 717 がそれぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第1の電極 713 に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、ITO 膜、インジウム亜鉛酸化物膜、窒化チタン膜、クロム膜、タンゲステン膜、Zn 膜、Pt 膜などの単層膜の他、窒化チタンとアルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれ、さらに陽極として機能させることができる。

#### 【0084】

また、有機化合物層 716 は、本発明の実施の形態や実施例1の構造を用いる。詳細は実施の形態または実施例1を参照すればよい。

#### 【0085】

さらに、有機化合物層 716 上に形成される第2の電極（陰極）717 に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料 (Al、Ag、Li、Ca、またはこれらの合金 MgAg、MgIn、AlLi、CaF<sub>2</sub>、または CaN) を用いればよい。なお、電界発光層 716 で生じた光が第2の電極 717 を透過させる場合には、第2の電極（陰極）717 として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜 (ITO、酸化インジウム酸化亜鉛合金、酸化亜鉛等) との積層を用いるのが良い。

#### 【0086】

さらにシール剤 705 で封止基板 704 を素子基板 710 と貼り合わせることに  
より、素子基板 701、封止基板 704、およびシール剤 705 で囲まれた空間  
707 に有機発光素子 718 が備えられた構造になっている。なお、空間 707  
には、不活性気体（窒素やアルゴン等）が充填される場合の他、シール剤 705  
で充填される構成も含むものとする。

#### 【0087】

なお、シール剤 705 にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これら  
の材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また、  
封止基板 704 に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、ポリイミド、ポ  
リアミド、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、PES、PC、PET、PEN 等から  
なるプラスチック基板を用いることができる。

#### 【0088】

以上のようにして、本発明の有機発光素子を有する発光装置を得ることができる。  
。

#### 【0089】

##### （実施例 3）

上記実施例で述べた本発明の発光装置は、発光色の色純度が高く、なおかつ寿命  
が長いという利点を有する。したがって、前記発光装置が表示部等として含まれ  
る電気器具は、従来より視認性および信頼性も高く極めて有用である。

#### 【0090】

本発明により作製した発光素子からなる発光装置を用いて様々なモジュール（ア  
クティブマトリクス型液晶モジュール、アクティブマトリクス型 EL モジュール  
、アクティブマトリクス型 EC モジュール）が作製でき、さらにそれらを組み込  
んだ電子機器を作製することが出来る。

#### 【0091】

その様な電子機器としては、ビデオカメラ、デジタルカメラ、ヘッドマウント  
ディスプレイ（ゴーグル型ディスプレイ）、カーナビゲーション、プロジェクタ  
、カーステレオ、パーソナルコンピュータ、携帯情報端末（モバイルコンピュー  
タ、携帯電話または電子書籍等）などが挙げられる。それらの一例を図 8、図 9



に示す。

#### 【0092】

図8（A）は携帯電話であり、本体801、音声出力部802、音声入力部803、表示部804、操作スイッチ805、アンテナ806、画像入力部（CCD、イメージセンサ等）807等を含む。本発明の発光素子からなる発光装置を表示部804に用いた携帯電話を作製することにより、高視認性で高信頼性を有する携帯電話を実現できる。

#### 【0093】

図8（B）は携帯書籍（電子書籍）であり、本体808、表示部809、810、記憶媒体811、操作スイッチ812、アンテナ813等を含む。本発明の発光素子からなる発光装置を表示部809に用いた携帯書籍（電子書籍）を作製することにより、高視認性で高信頼性を有する携帯書籍（電子書籍）を実現できる。

#### 【0094】

図8（C）はディスプレイであり、本体814、支持台815、表示部816等を含む。本発明の発光素子からなる発光装置を表示部816に用いたディスプレイを作製することにより、高視認性で高信頼性を有するディスプレイを実現できる。

#### 【0095】

ちなみに図8（C）に示すディスプレイは中小型または大型のもの、例えば5～20インチの画面サイズのものである。また、このようなサイズの表示部を形成するためには、基板の一辺が1mのものをを用い、多面取りを行って量産することが好ましい。

#### 【0096】

図9（A）はパーソナルコンピュータであり、本体901、画像入力部902、表示部903、キーボード904等を含む。本発明の発光素子からなる発光装置を表示部903に用いたパーソナルコンピュータを作製することにより、高視認性で高信頼性を有するパーソナルコンピュータを実現できる。

#### 【0097】

図 9 (B) はビデオカメラであり、本体 905、表示部 906、音声入力部 907、操作スイッチ 908、バッテリー 909、受像部 910等を含む。本発明の発光素子からなる発光装置を表示部 906 に用いたビデオカメラを作製することにより、高視認性で高信頼性を有するビデオカメラを実現できる。

【0098】

図 9 (C) はモバイルコンピュータ（モービルコンピュータ）であり、本体 911、カメラ部 912、受像部 913、操作スイッチ 914、表示部 915等を含む。本発明の発光素子からなる発光装置を表示部 915 に用いたモバイルコンピュータ（モービルコンピュータ）を作製することにより、高視認性で高信頼性を有するモバイルコンピュータ（モービルコンピュータ）を実現できる。

【0099】

図 9 (D) はプログラムを記録した記録媒体（以下、記録媒体と呼ぶ）を用いるプレーヤーであり、本体 916、表示部 917、スピーカ部 918、記録媒体 919、操作スイッチ 920等を含む。なお、このプレーヤーは記録媒体として DVD (Digital Versatile Disc)、CD等を用い、音楽鑑賞や映画鑑賞やゲームやインターネットを行うことができる。本発明の発光素子からなる発光装置を表示部 917 に用いたプレーヤーを作製することにより、高視認性で高信頼性を有するプレーヤーを実現できる。

【0100】

図 9 (E) はデジタルカメラであり、本体 921、表示部 922、接眼部 923、操作スイッチ 924、受像部（図示しない）等を含む。本発明の発光素子からなる発光装置を表示部 922 に用いたデジタルカメラを作製することにより、高視認性で高信頼性を有するデジタルカメラを実現できる。

【0101】

以上の様に、本発明の適用範囲は極めて広く、あらゆる分野の電子機器の作製方法に適用することが可能である。また、本実施例の電子機器は実施の形態、実施例 1 または 2 のどのような組み合わせからなる構成を用いても実現することができる。

【0102】

**【発明の効果】**

本発明によって、色純度の高い発光を得ると同時に、連続駆動時において安定して発光する高耐性で長寿命である信頼性の高い発光素子を得ることが出来る。従って、本発明の発光素子からなる発光装置を表示部等として用いた電気器具も、視認性および信頼性が高く極めて有用である。

**【図面の簡単な説明】**

【図 1】 本発明の有機発光素子の構造。

【図 2】 従来の 2 種類の色素をドーピングした有機発光素子の構造の一例。

【図 3】 従来の 1 種類の色素をドーピングした有機発光素子の構造の一例

【図 4】 実施例 1 で素子を作製する為に用いる蒸着装置の図。

【図 5】 本発明と従来とを比較するための発光素子における E L スペクトル  
。

【図 6】 本発明と従来とを比較するための発光素子の定電流駆動時間と規格化輝度の関係を示すグラフ。

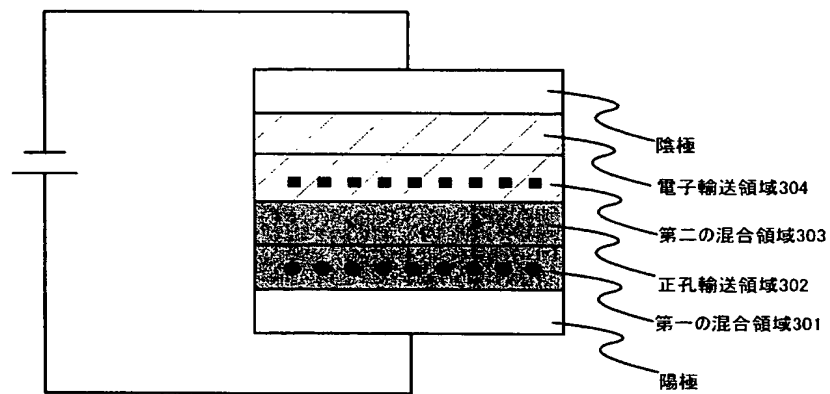
【図 7】 実施例 2 を示す上面図および断面図。

【図 8】 電子機器の一例を示す図。（実施例 3）

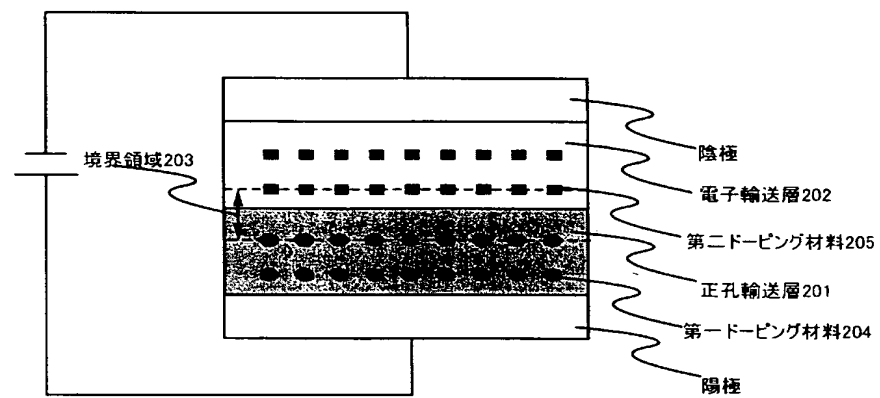
【図 9】 電子機器の一例を示す図。（実施例 3）

【書類名】 図面

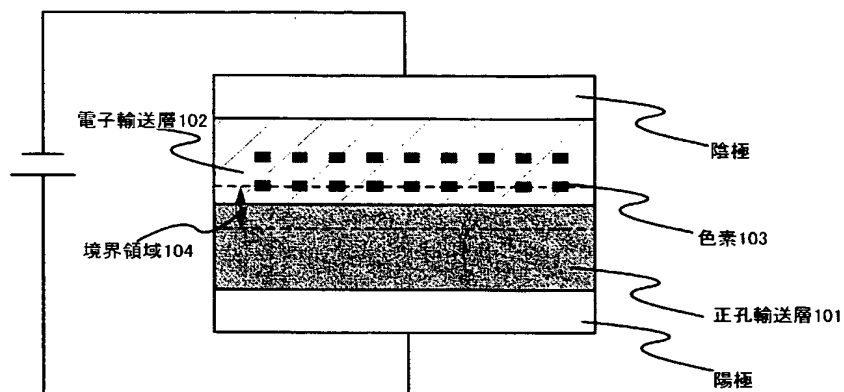
【図 1】



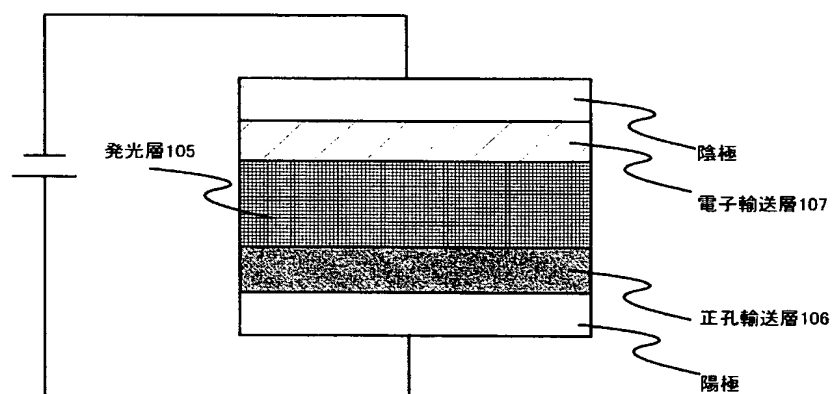
【図 2】



【図 3】

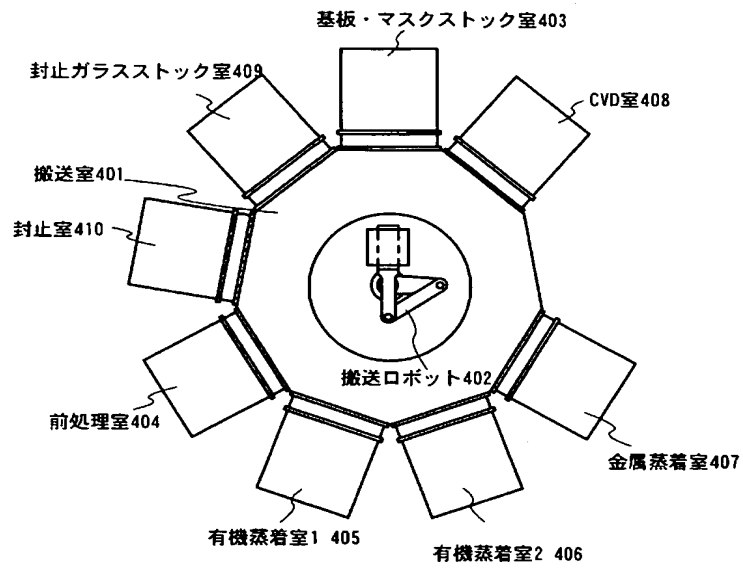


(a)

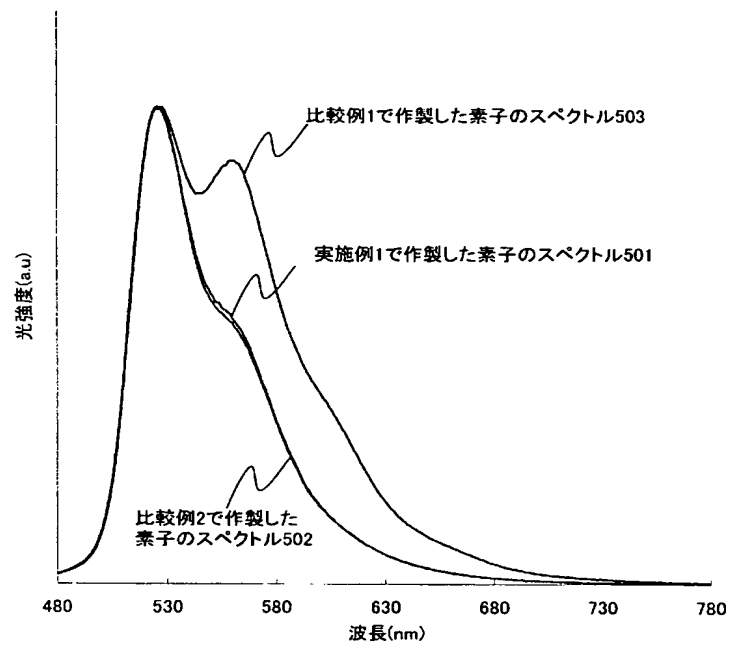


(b)

【図 4】

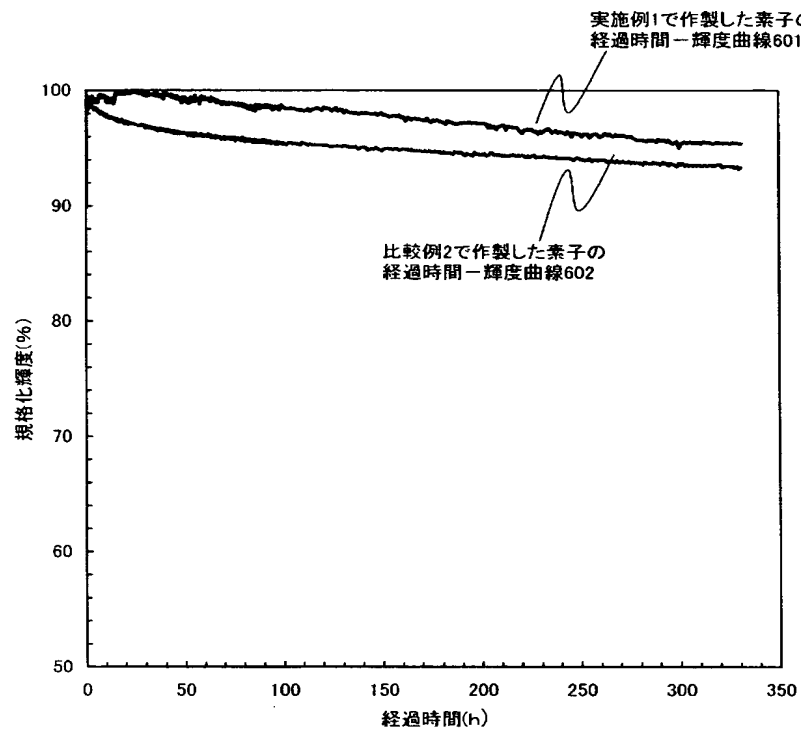


【図 5】

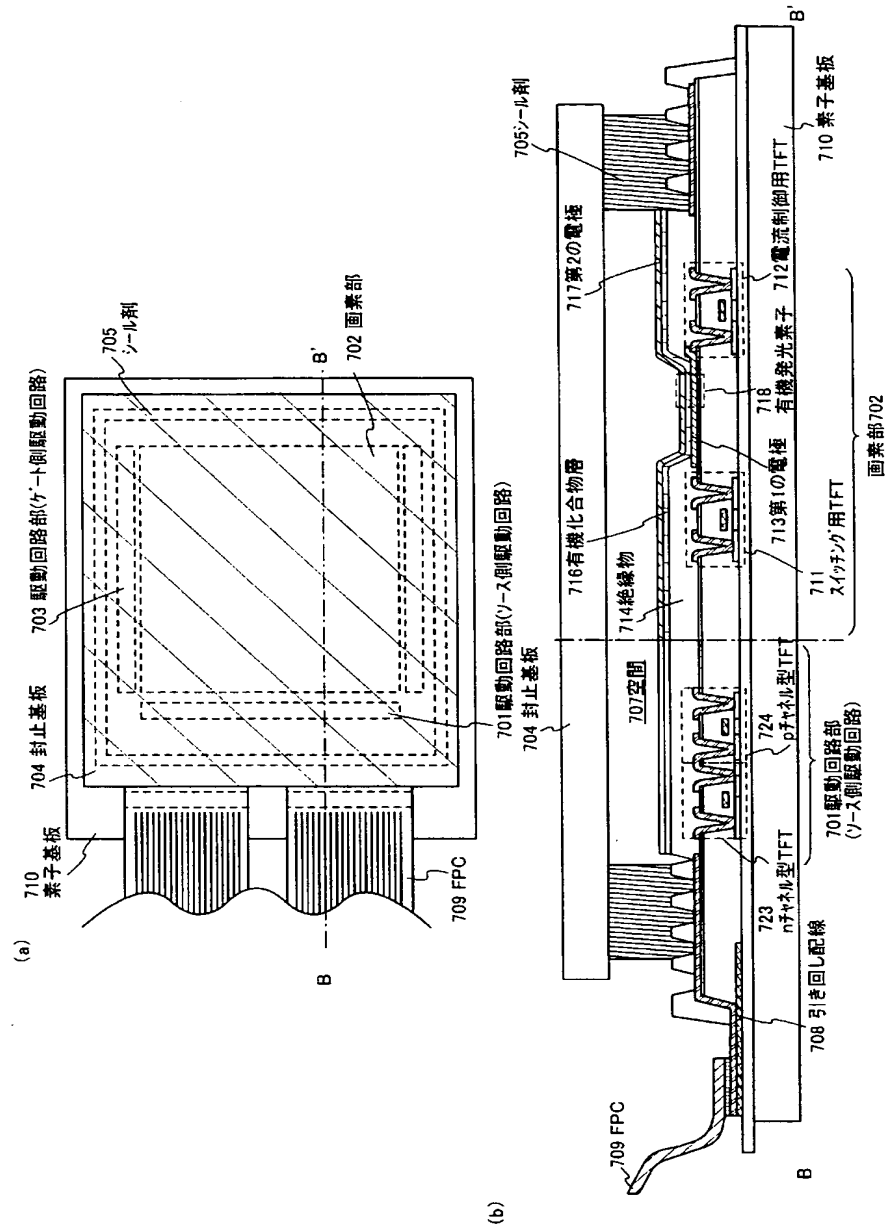




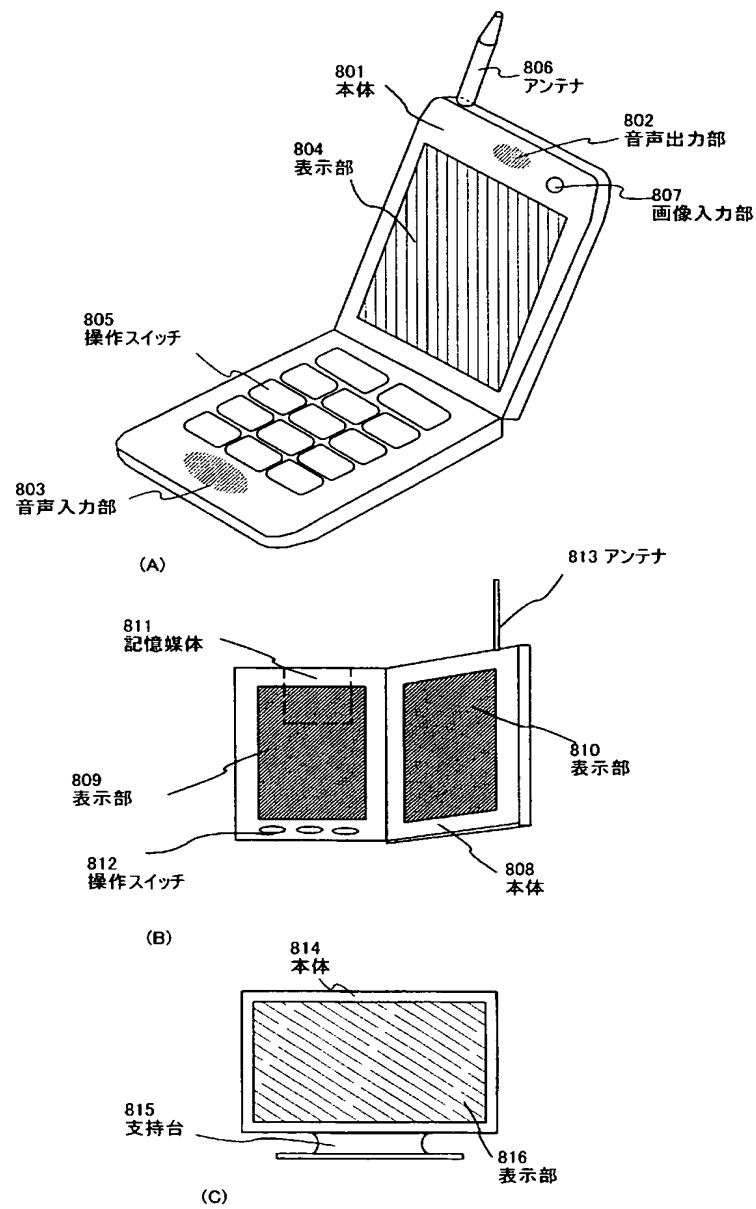
【図 6】



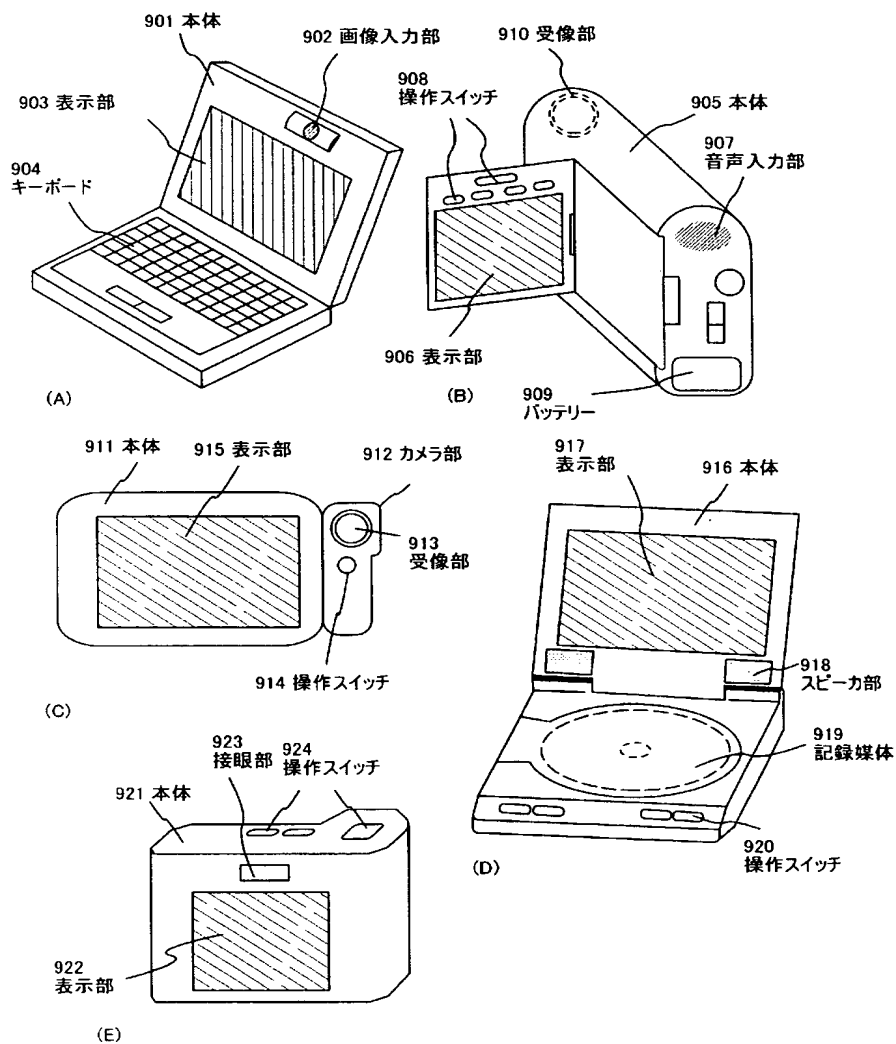
【図 7】



【図 8】



【図 9】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 赤、青、緑の色純度の高い発光を得ると同時に、連続駆動時において安定して発光する発光素子を提供する。

【解決手段】 本発明の発光素子は、正孔輸送材料、電子輸送材料、第一不純物（第一ドーピング材料）および第二不純物（第二ドーピング材料）を含む有機化合物膜が、陽極および陰極の間に設けられた発光素子において、前記有機化合物膜は、前記陽極側から、前記正孔輸送材料および前記第一不純物を含む第一の混合領域と、前記正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、前記電子輸送材料および前記第二不純物を含む第二の混合領域と、前記電子輸送材料からなる電子輸送領域、とが順次積層されることを特徴とする。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 0 1 9 5 4 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 1 5 3 8 7 8 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 1 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地

氏 名

株式会社半導体エネルギー研究所